

シビアアクシデント評価研究グループ

—より科学的なシビアアクシデントの進展とソースターム評価に向けて—

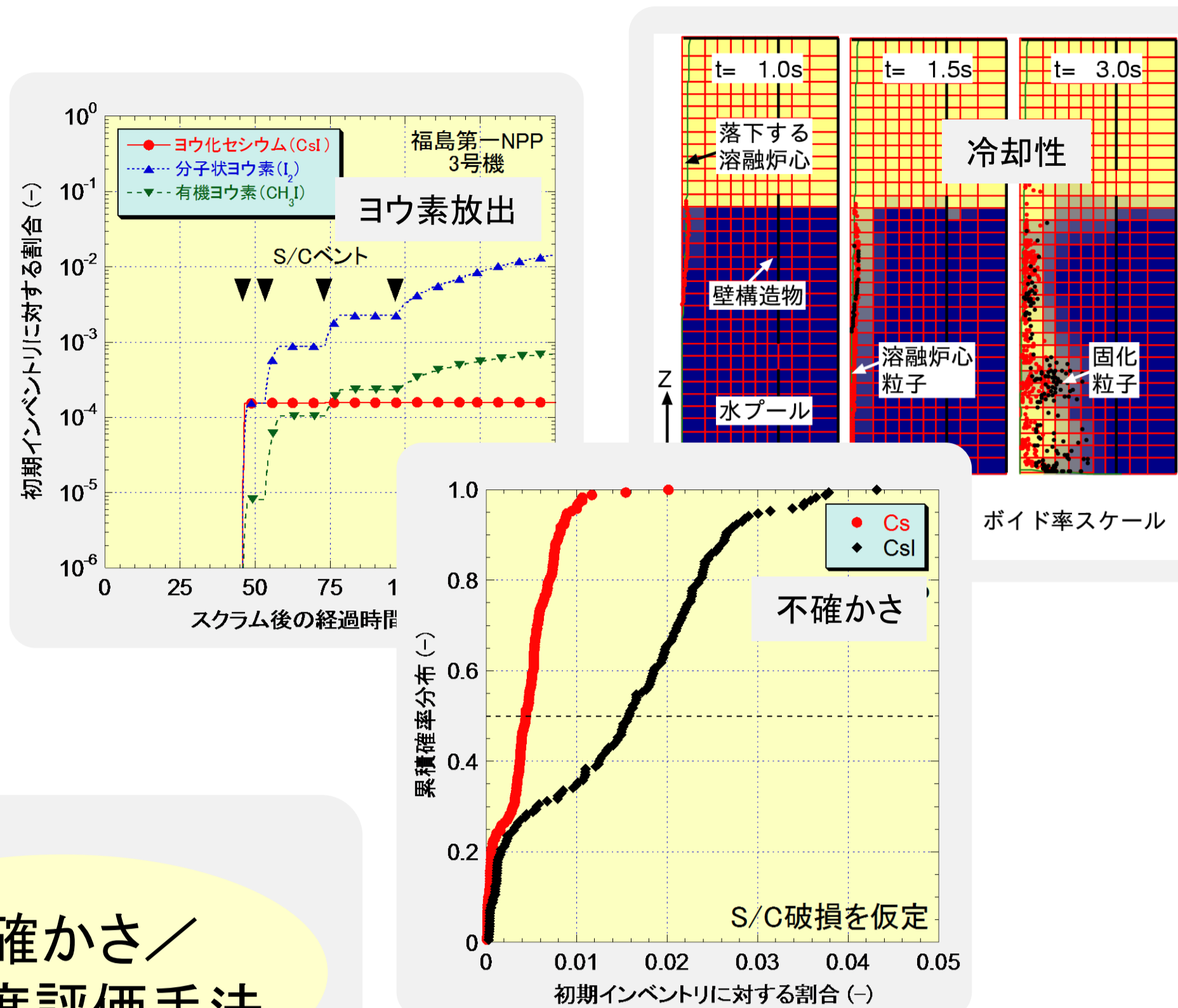
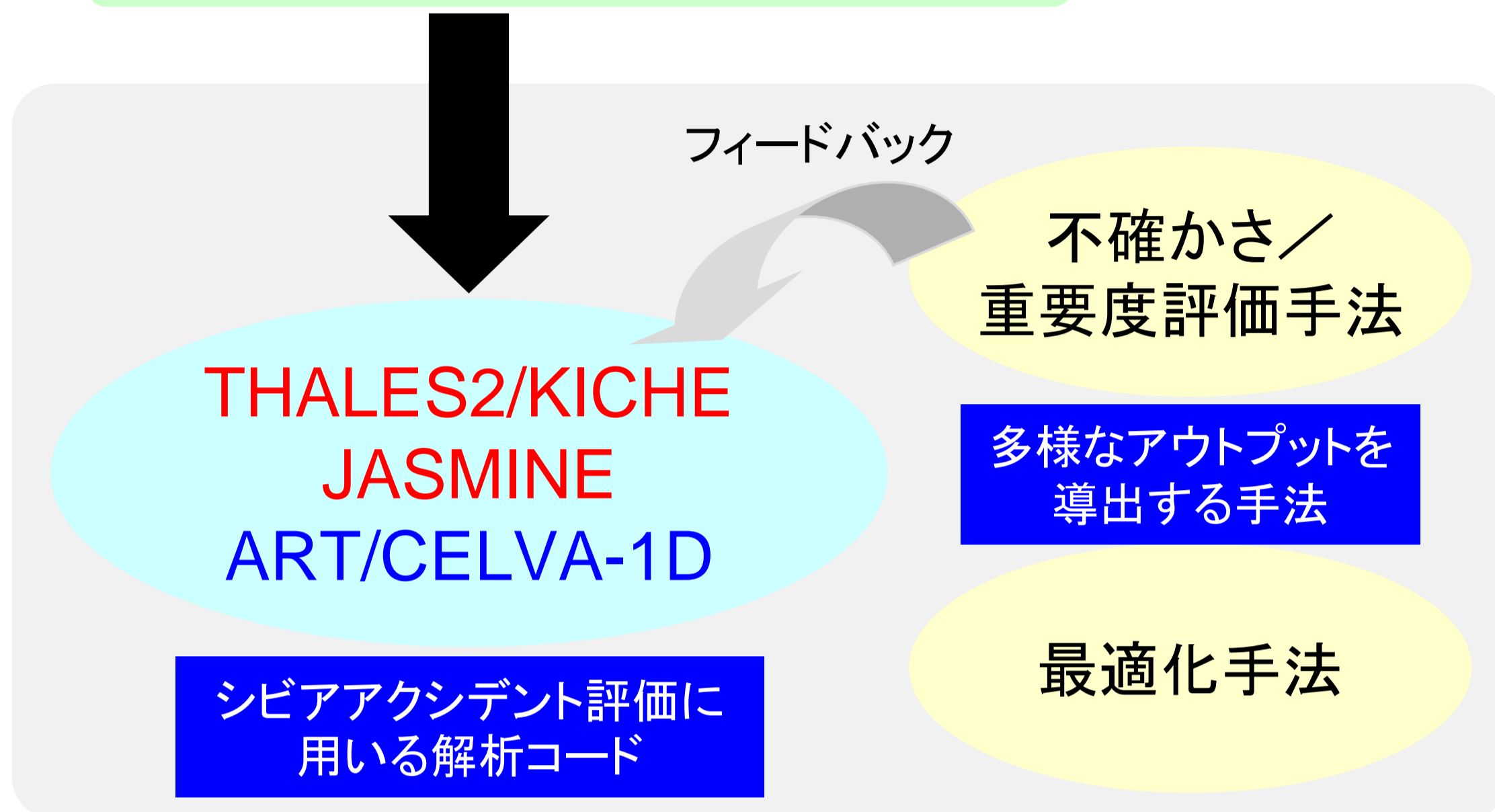
本グループの研究概要

- ◆ シビアアクシデント時におけるソースターム、及び溶融炉心冷却性評価手法の高度化

THALES2/KICHE (ソースターム) 及び JASMINE (溶融炉心冷却性): 軽水炉
ART/CELVA-1D (熱流動) 等: 再処理施設

- ◆ 最新知見を反映したシビアアクシデント評価

▶ 実験や理論に基づいた解析・評価手法の高度化に係わる技術基盤の整備

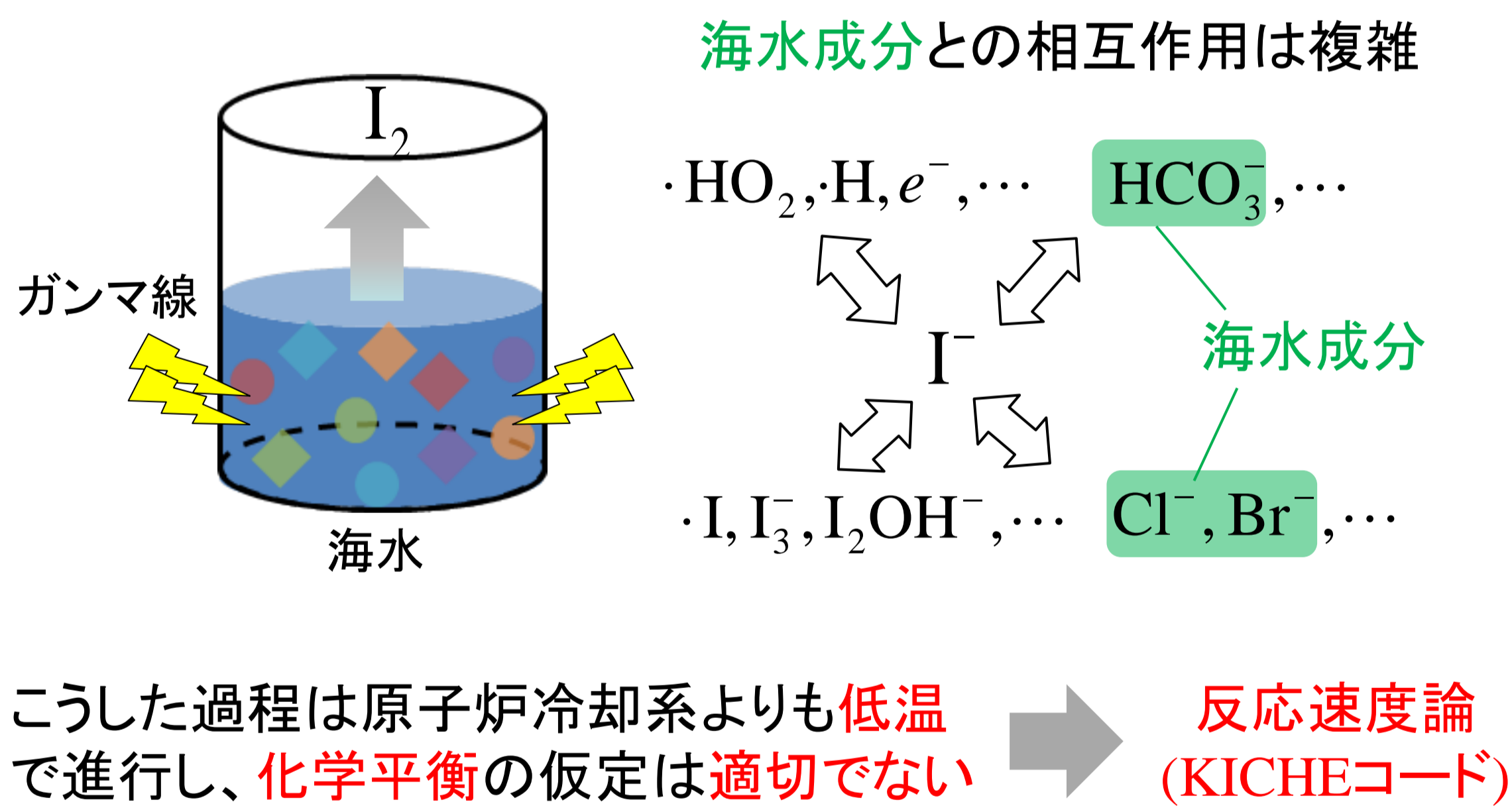


- 福島第一原子力発電所事故の分析・評価 (BSAF計画等)
- リスク評価や緊急時防護対策の最適化に用いるソースターム
- シビアアクシデント対策 (格納容器ベントや格納容器内注水)の有効性評価

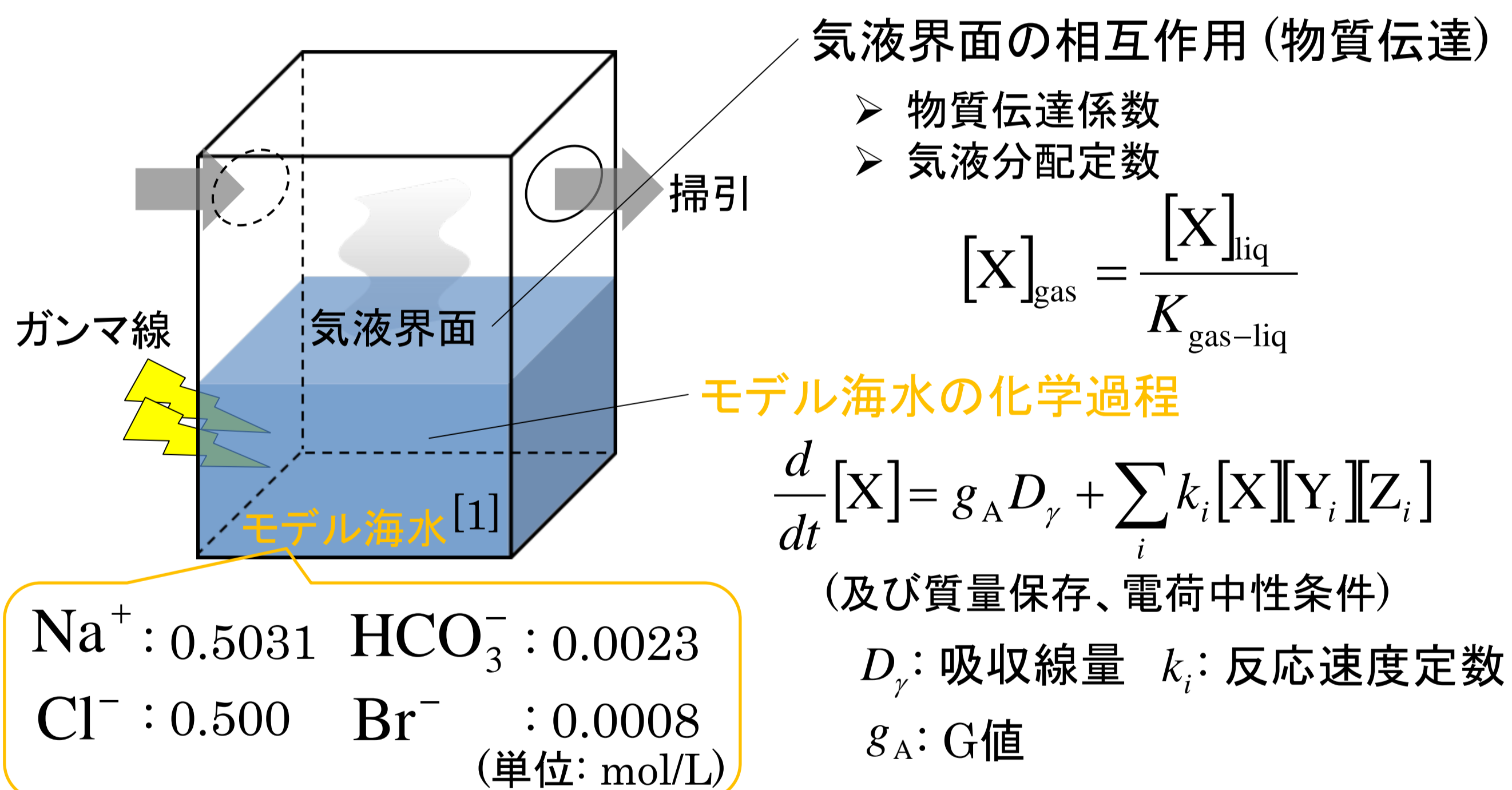
—最近の研究活動の紹介—

海水注入がヨウ素分子の生成に与える影響

海水成分とヨウ素分子生成



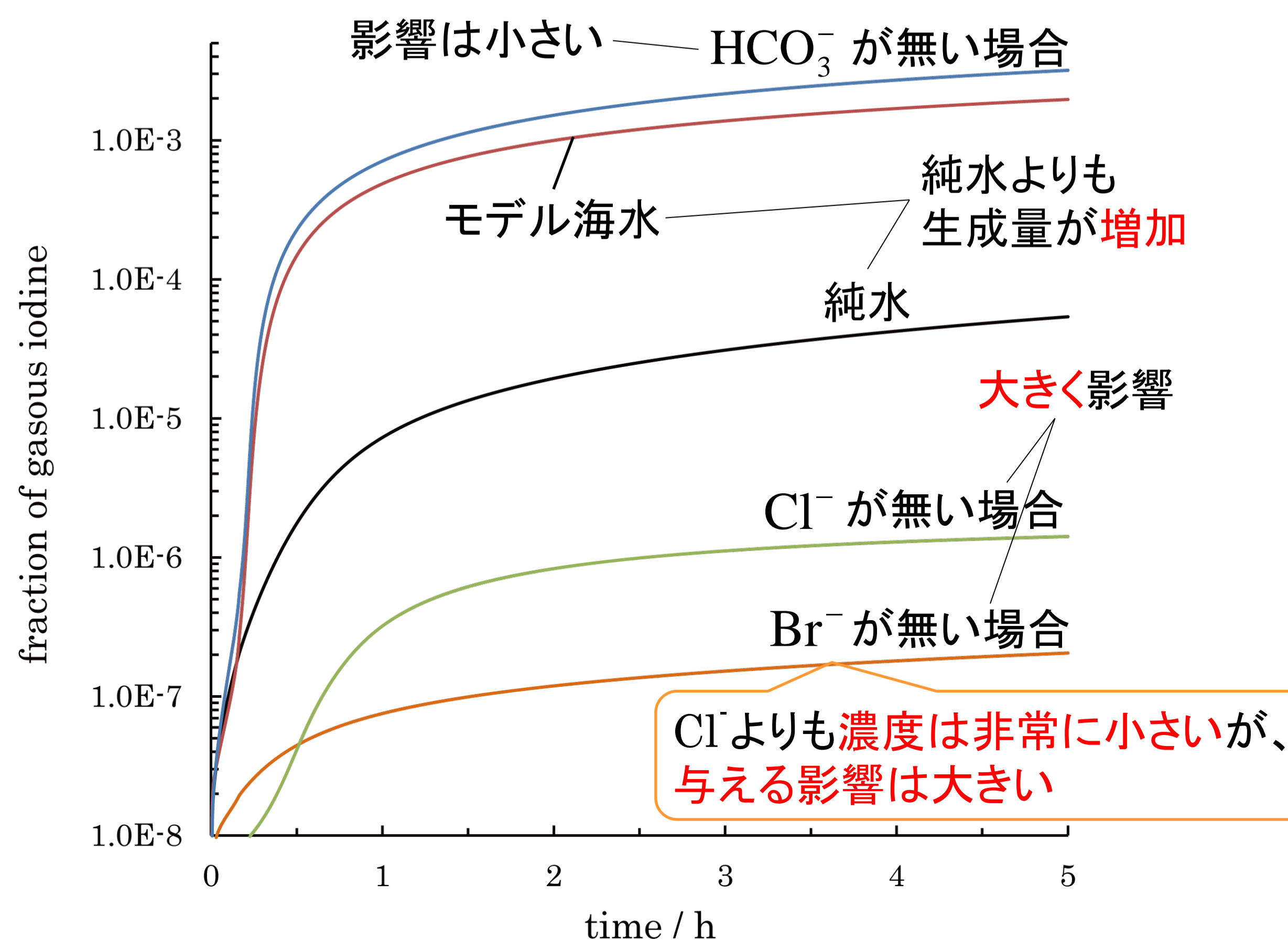
KICHEコード^[2]による解析モデル



[1] E. Bjergbakke et al., Radiochim. Acta, 48, 73 (1989). [2] K. Moriyama et al., JAEA-Data/Code, 2010-34, (2011).

化学反応データセット

初期ヨウ素量に対するI2掃引量の割合



[3] A. J. Elliot et al., AECL EACL 153-127160-450-001 (2009). [4] M. Kelm et al., FZKA 6977 report (2004). [5] B. G. Ershov et al., Ru. Chem. Bull. Int. Ed., 54, 1378 (2005). [6] B. G. Ershov et al., Ru. Chem. Bull. Int. Ed., 57, 1821 (2008).

FP化学を考慮したソースターム評価コードの整備

福島第一原発事故のソースタームPIRT評価により抽出された重要な化学現象 (Suehiro et al., 2015, Nuc. Eng. Des. 286, 163-174)

- B₄C制御材のヨウ素、セシウム化学種への影響
- 海水のヨウ素、セシウム化学種への影響

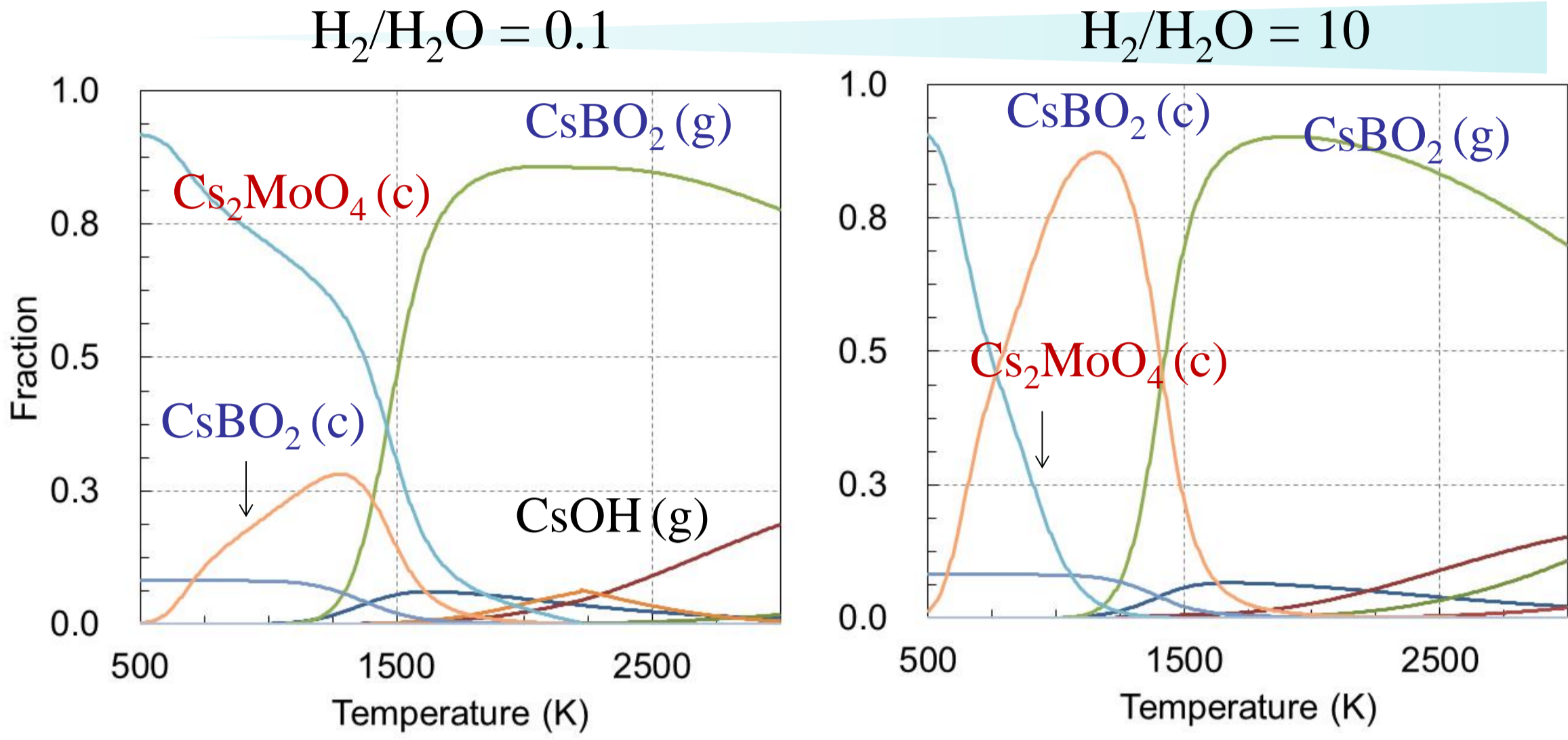
- 液相に捕集されたヨウ素の放射線分解による気相への再放出

B₄C制御材がFP化学種に与える影響

- 化学熱力学平衡計算機能を有するFP移行挙動計算コード VICTORIA2.0を用いたFP化学種の同定

解析条件: Cs-I-Mo-B-C-H-O系, 酸化/還元雰囲気

解析例) 各化学種のCs元素割合 (モル比B₄C / Cs = 0.32)



【Cs化学種】

- ◆ B₄C存在下では、還元雰囲気や高温領域でCsBO₂が優勢
- ◆ <1800 Kの酸化雰囲気では、Cs₂MoO₄生成反応が優位

【I化学種】

- ◆ B₄Cの影響を受けにくいB₄C高濃度条件ではHI生成が促進

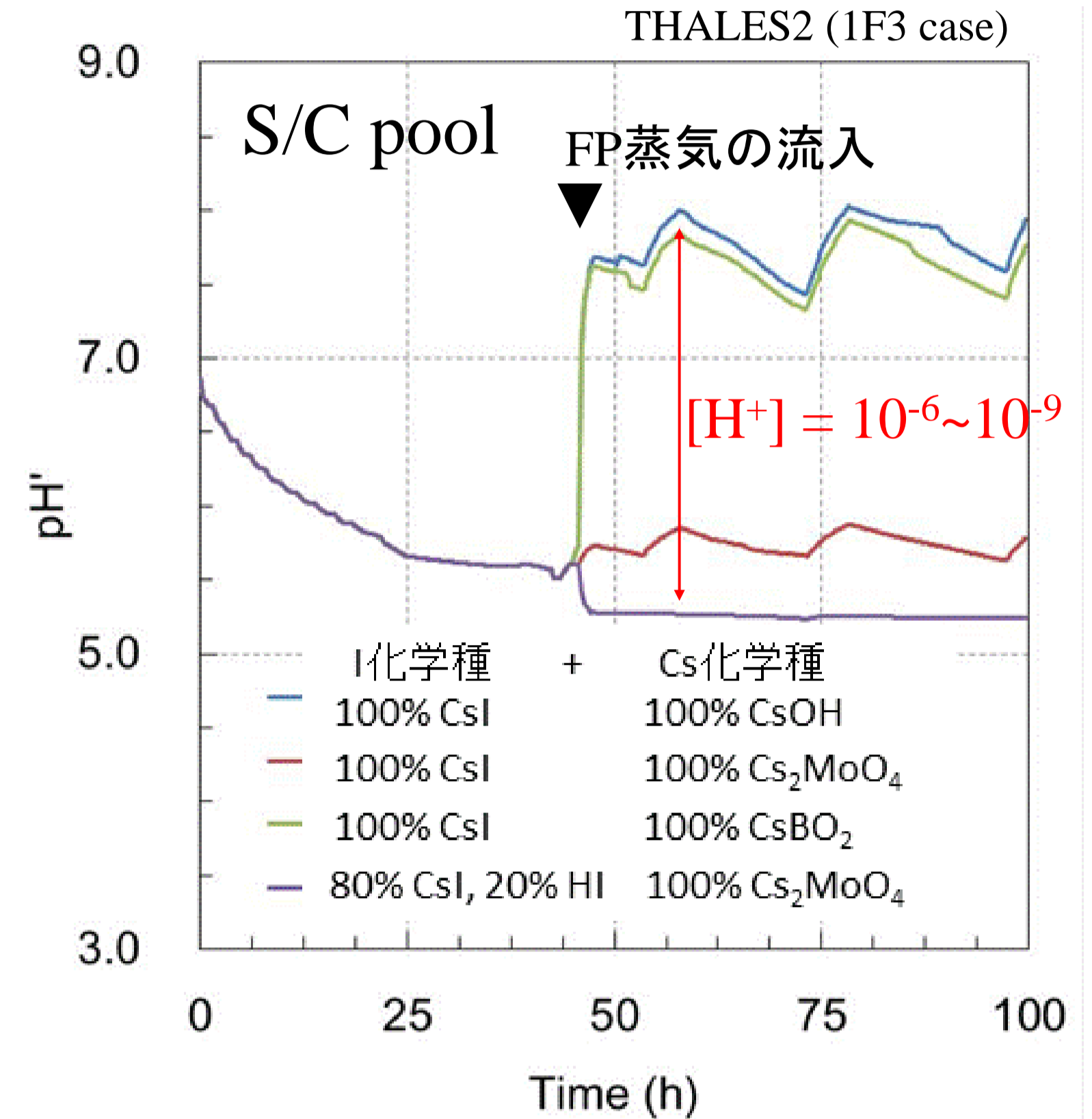
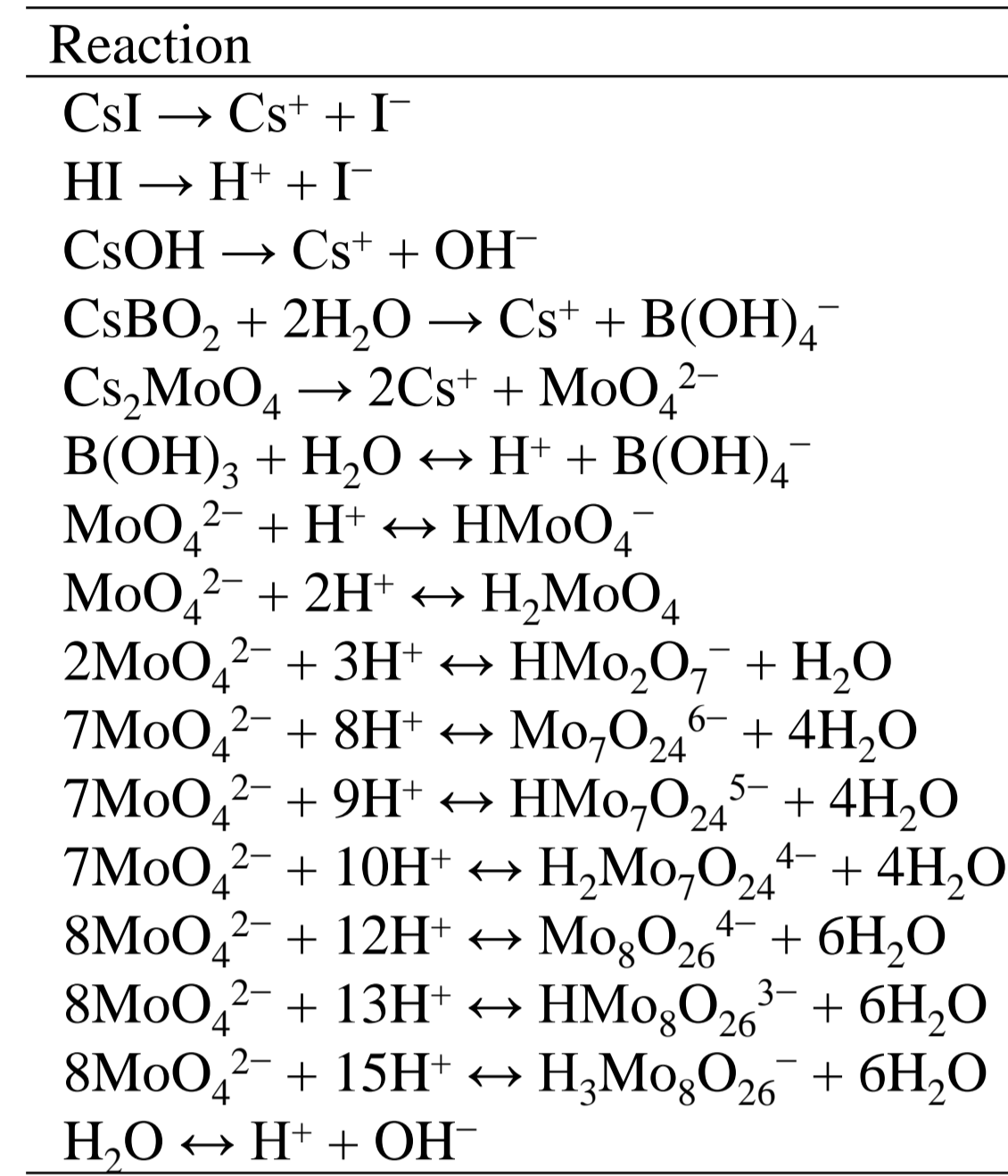


FP化学種の液相pHに与える影響

- 燃料より放出されたCsおよびIの化学種をパラメータとしたTHALES2による解析と化学平衡計算によるpH評価

化学種: CsI, HI, CsOH, CsBO₂, Cs₂MoO₄

pH評価時に考慮した液相内化学反応



- ◆ pH評価には液相内にトラップされるFPの情報(化学種, 物質質量)が不可欠
- ⇒ 水の放射線分解に伴う揮発性ヨウ素化学種生成に大きく寄与

- ◆ 特にHIやCs₂MoO₄の化合物割合が高い場合、低pH化(揮発性ヨウ素化学種生成の促進)が進む可能性

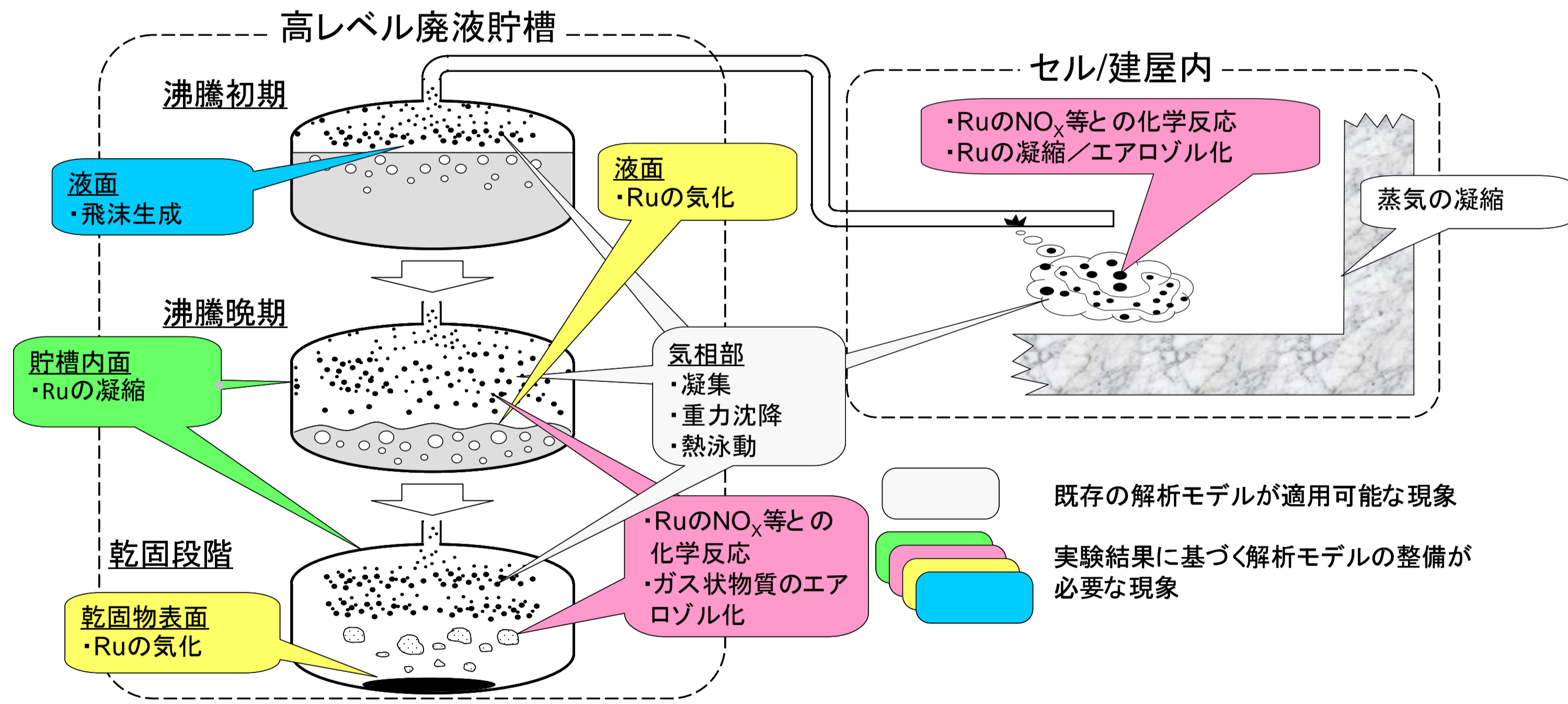
再処理施設における蒸発乾固事故解析手法の整備

蒸発乾固事故(リスク評価上、最も重要)の特徴

- 沸騰により多量の水蒸気および硝酸蒸気の発生
- 放射性物質の硝酸塩の脱硝反応によるNO_xガスの発生
- ⇒ 貯槽を含めた施設内での熱流動状態および凝集、沈着等のエアロゾルの移行挙動解析が必要

施設外への放射性物質の移行量評価のための主要なデータ

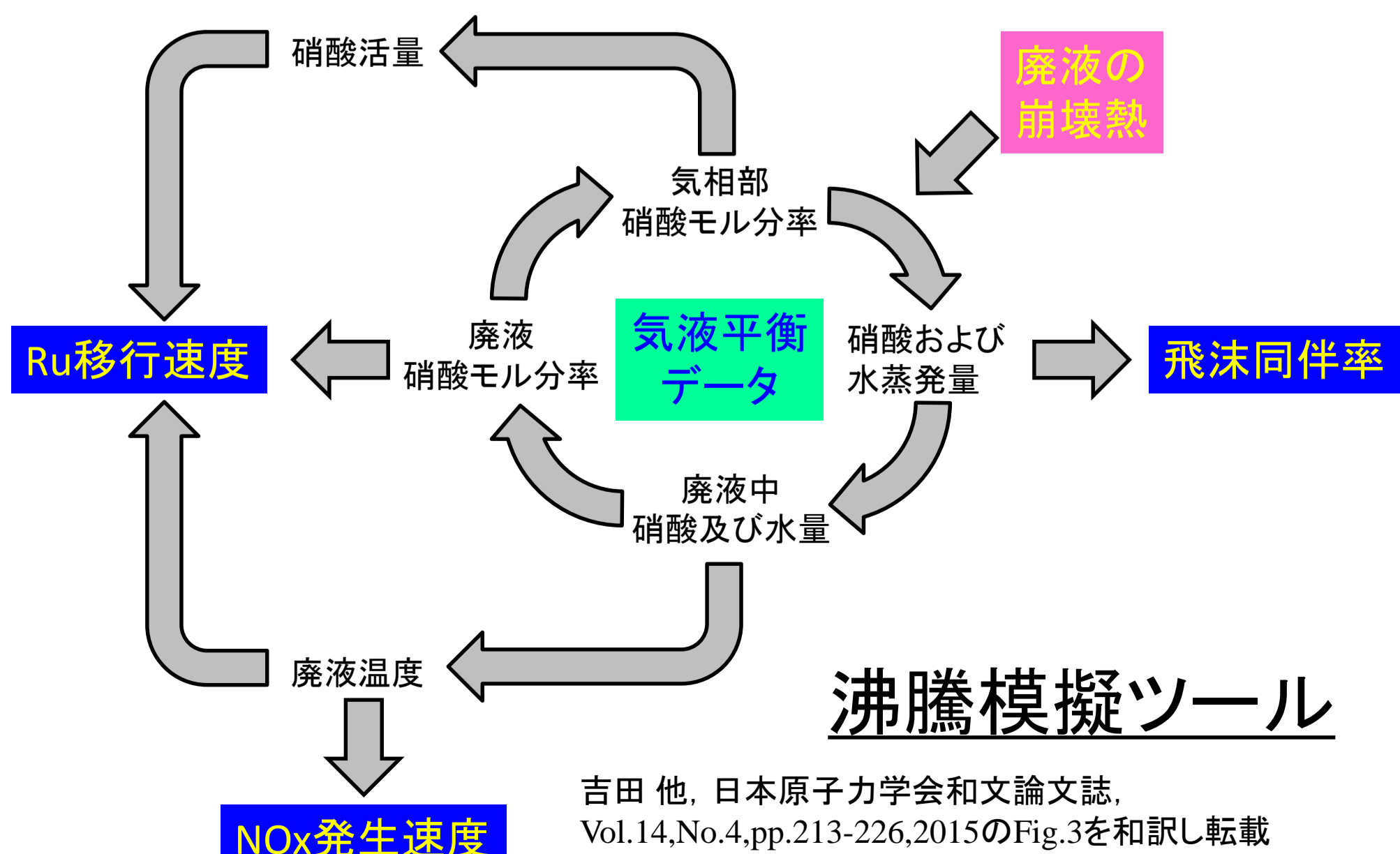
- 貯槽を含めた施設内の熱流動条件
- ガス状Ruの発生量
- Ruの凝縮液への移行
- 飛沫同伴による不揮発性物質の移行
- 気相中のガス状Ruの化学変化



高レベル廃液貯槽の沸騰事故で想定されるエアロゾル等の生成、移行沈着現象

廃液沸騰時の主要パラメータの計算スキーム

- 多成分硝酸塩水溶液の気液平衡に近い状態で沸騰が推移すると仮定すると、廃液の温度、硝酸および水の蒸発量、気相部硝酸モル分率が計算可能
- 硝酸塩水溶液の気液平衡実験データを分析し、硝酸塩濃度と気液各相の硝酸モル分率の相関式を導出

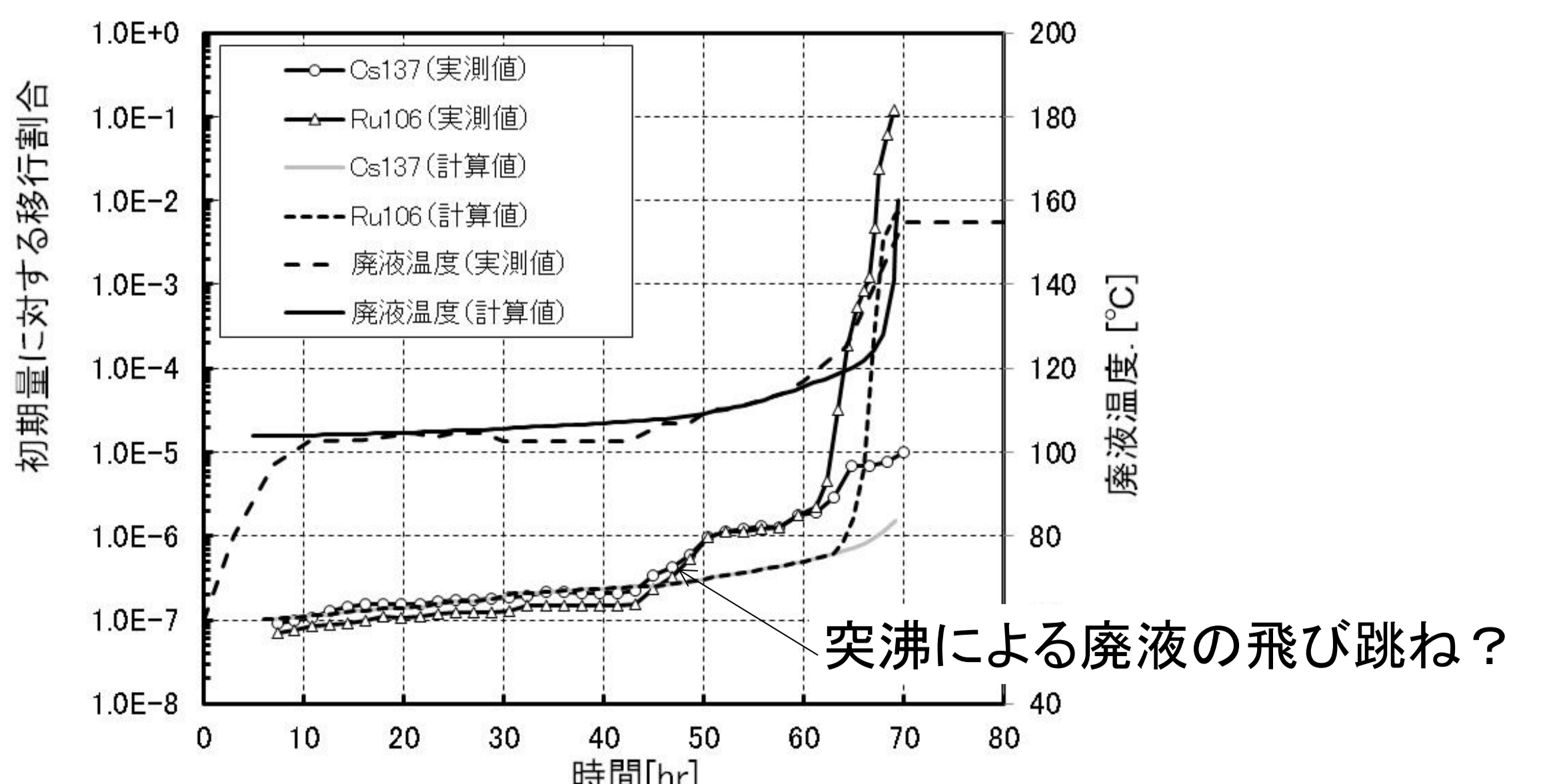


吉田 他, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.14, No.4, pp.213-226, 2015のFig.3を和訳し転載

- 産学官共同研究(MF実験)の結果等に基づく飛沫同伴率、Ru移行速度に係る相関式を導出済み

CEA実廃液沸騰実験の模擬

- 沸騰初期段階(廃液温度が120°C未満)での飛沫同伴による放射性物質の気相へ移行を精度良く模擬
- 沸騰晚期から乾固に至る領域では、実験装置内での硝酸の凝縮による還流(モデル化していない)が原因で、模擬が不十分



吉田 他, 日本原子力学会和文論文誌, Vol.14, No.4, pp.213-226, 2015のFig.18を和訳し転載

- ◆ 沸騰模擬ツールをARTコードに組み込み済み
- ◆ 規制庁に沸騰模擬ツールを提供

より科学的なシビアアクシデントの進展とソースターム評価に向けて 日本原子力研究開発機構 安全研究センター シビアアクシデント評価研究グループ

当研究グループは、原子力施設のもつ潜在的なリスクに関する情報を活用したより科学的・合理的な規制の構築を支援するため、シビアアクシデントの進展やそれに伴うソースタームを評価する研究を行っています。

シビアアクシデントの進展やソースタームを把握するためには、シビアアクシデント時の様々な現象や運転員の操作等を考慮できるシビアアクシデント総合解析コードが必要です。原子力機構では、シビアアクシデント総合解析コード THALES2/KICHE の整備を進め、福島第一原子力発電所 (1F) 事故の解析や代表的な事故シーケンスのソースターム評価に適用するとともに、ソースタームの不確かさ/重要度解析手法及び最適化解析手法の構築を行っています。また、原子力機構の熔融炉心/冷却材相互作用解析コード JASMINE を熔融炉心/コンクリート相互作用の発生を防止する対策の有効性評価に活用すべく、解析モデルの改良を進めています。

1F 事故を踏まえた新たな原子力規制では、再処理施設においても、シビアアクシデントへの対処が要求されています。当研究グループでは、再処理施設のリスク評価上重要な高レベル放射性廃液貯槽の蒸発乾固事故を対象に、廃液から気相中に放出される放射性物質の量や化学形を予測するモデルを構築しています。合わせて、これらの知見を原子力機構の放射性物質放出移行挙動解析コード ART に導入し、再処理施設ソースターム評価手法の高度化を進めています。

このポスターでは、最近の成果から以下の 3 つの研究成果をご紹介します。

1. 海水注入がヨウ素分子の生成に与える影響

原子炉内への注水はシビアアクシデント対応策の一つであり、福島第一原子力発電所の事故のように純水が利用できない状況に至った場合には海水が注入されます。海水には様々な有機物や無機イオンなどが溶けていますが、これらがシビアアクシデント時の核分裂生成物(FP)の化学にどのように作用するかはほとんど検討されていません。本研究では放射性ヨウ素と海水成分のうち無機イオンとの相互作用に注目しています。この相互作用は左上の図に示すとおり複雑であり、原子炉冷却系よりも低温で進行する化学過程であるため、平衡論を仮定することは適切ではありません。そこで、化学反応速度論に基づいて解析を行いました。

本研究で用いた系は気相とモデル海水から成り、その中に溶解した FP 由来のガンマ線が照射されます。モデル海水内で生成された揮発性の高い化学種は物質伝達によって気相に移行し、掃引されます。モデル海水にはナトリウムイオン、炭酸水素イオン、塩化物イオン、臭化物イオンがそれぞれ示した濃度で存在し、標準的な化学反応速度式にガンマ線による生成項を付け加えた式ですべての化学種の濃度が計算されます。本研究においては、モデル海水を扱うために非常に多くの化学反応を追加し、全部で 266 反応を考慮しました。

ヨウ素の初期インベントリに対する掃引されたヨウ素分子の割合の時間変化を解析した結果、モデル海水(赤線)は純水(黒線)の場合と比較して、5 時間でおおよそ 2 桁高いヨウ素が放出されており、海水成分によって放射性ヨウ素分子の生成が促進されることを示唆しています。モデル海水に含まれる個々のイオン種の影響度を調べるために、ある成分の濃度だけを 0 にした検討を行いました。炭酸水素イオンが無いとき(青線)は赤線と似ており、このイオンの影響が小さいことを示しています。一方で、塩化物イオン(緑線)や臭化物イオン(オレンジ線)が無い場合はヨウ素分子の生成量は非常に少なくなっており、これらのイオンが大きく影響することを示しています。特に臭化物イオンは塩化物イオンの 0.16% の濃度しかないにも関わらず塩化物イオンと同等の効果を持っており、ヨウ素分子の生成を考える上で非常に重要な成分と言えます。

2. FP 化学を考慮したソースターム評価コードの整備

福島第一原子力発電所事故後に日本原子力学会が実施したソースターム研究に関する重要度の検討では、特に重要な化学現象として、(1) B_4C 制御材のヨウ素/セシウム化学反応への影響、(2) 液相に捕集されたヨウ素の放射線場における化学と気相への再移行、(3) ヨウ素/セシウム化学反応に及ぼす海水の影響が抽出されています。(2)に関連して、高揮発性ヨウ素 (I_2 や有機ヨウ素) の生成が液相 pH に強く依存することが知られていますが、pH を評価するためには、液相に捕集される化学種やその物質量を把握する必要があります。本研究では、原子炉冷却系内におけるヨウ素及びセシウムの化学種を B_4C の影響を加味して同定するために、Cs-I-Mo-B-C-H-O 系の化学熱力学平衡解析を行いました。合わせて、福島第一原子力発電所 3 号機の事故と類似のシーケンスを対象としたシビアアクシデント総合解析コード THALES2 による解析の結果に基づいて、サプレッションチャンバー (S/C) 液相の pH 評価を行いました。

化学熱力学平衡解析の結果、 B_4C 存在下においては、セシウムの主要な化学種が $CsBO_2$ になり、 B_4C 非存在下で支配的であった $CsOH$ 、 Cs_2MoO_4 の生成割合が減少することが明らかになりました。また、ヨウ素については、ホウ素化学種との反応により HI の生成割合が有意に増加することが示されました。化学熱力学平衡解析から予想された化学種 (CsI , HI , $CsOH$, Cs_2MoO_4 , $CsBO_2$) をパラメータとした BWR のシビアアクシデント時における S/C 液相の pH 評価では、 $[H^+]$ 濃度が 10^{-6} ~ 10^{-9} mol/L の範囲で変化し、液相 pH 評価を行う上で化学種やその物質量に係わる情報が不可欠であることが示されました。特に、HI や Cs_2MoO_4 は、その割合が高い場合に液相の低 pH 化による揮発性ヨウ素化学種の生成が促進される可能性があるという点で重要な化学種であると言えます。

3. 蒸発乾固事故の解析手法の整備

蒸発乾固事故では、沸騰により大量の水蒸気及び硝酸蒸気が発生し、さらに沸騰が進むと廃液の乾固とともに、放射性物質硝酸塩の脱硝反応により NO_x ガスが発生します。これらの気体が貯槽から施設内のセル等に流出し、その移動に伴って、主にエアロゾルの形態を取る放射性物質が施設内から施設外へ移行すると考えられます。事故影響を評価する上では、貯槽を含めた施設内での熱流動状態及び凝集、沈着等のエアロゾル移行挙動を解析する必要があります。

蒸発乾固事故における沸騰の初期段階では、沸騰により発生した気泡が液面から離脱することによって生成される飛沫のうち比較的小さい粒径の放射性物質を含む液滴がエアロゾルとして気相へ移行します。さらに沸騰が進み溶液が乾固に至る沸騰晩期の過程では Ru 等の揮発性核種が大量に揮発し始めます。施設外への放射性物質移行量を評価する際には、放射性物質の気相への移行量、移行量を左右する沸騰中の廃液温度、硝酸濃度、搬送気体である水及び硝酸の蒸気量、移行経路での化学変化、蒸気の凝縮等による移行量の減少割合が重要なパラメータとなります。これらの多くは廃液の沸騰現象に関連するため、それを模擬するための計算プログラム (沸騰模擬ツール) を開発しました。

多成分硝酸塩水溶液である廃液の沸騰が気液平衡に近い状態で推移すると仮定すると、廃液の温度、硝酸及び水の蒸気量、気相部硝酸モル分率等の沸騰の状態を表すパラメータが計算できます。この計算スキームでは、任意の濃度の多成分硝酸塩の気液平衡データが必要です。このため種々の硝酸塩水溶液の気液平衡実験データを分析し、硝酸塩濃度と気液各相の硝酸モル分率の相関式を導出しました。この相関式と合わせて、産学官共同研究 (MF 研究) の実験結果等に基づき導出した飛沫同伴率、Ru 移行速度に係る相関式を沸騰模擬ツールに組み込みました。

沸騰模擬ツールの性能を確認するため、CEA で実施された実廃液を用いた沸騰実験の解析を試みました。沸騰初期段階 (廃液温度が 120°C 未満) での飛沫同伴による放射性物質の気相へ移行は精度良く模擬できていますが、沸騰晩期から乾固に至る領域では、実験装置内での硝酸の凝縮による高濃度硝酸水の還流 (モデル化していない) が原因で、廃液温度及び Ru 移行量の再現性が不十分とあることが分かりました。この沸騰模擬ツールをシビアアクシデント時放射性物質移行挙動解析コード ART に組み込むとともに、原子力規制庁に提供しました。